

DOCKET NO.: 263762US0PCT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Hans-Georg GOEBBEL, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HERewith

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/EP03/07600

INTERNATIONAL FILING DATE: July 14, 2003

FOR: PREPARATION OF TETRAHYDROGERANYLACETONE

REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION

Commissioner for Patents
Alexandria, Virginia 22313

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
Germany	102 31 945.6	15 July 2002

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/EP03/07600. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.

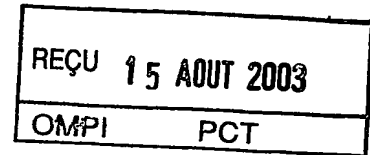


Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

Customer Number

22850

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 08/03)



**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

Aktenzeichen: 102 31 945.6

Anmeldetag: 15. Juli 2002

Anmelder/Inhaber: BASF Aktiengesellschaft, Ludwigshafen/DE

Bezeichnung: Verfahren zur Herstellung von
Tetrahydrogeranylaceton

IPC: C 07 C, B 01 J

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 22. Juli 2003
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

Verfahren zur Herstellung von Tetrahydrogeranylacetone

Beschreibung

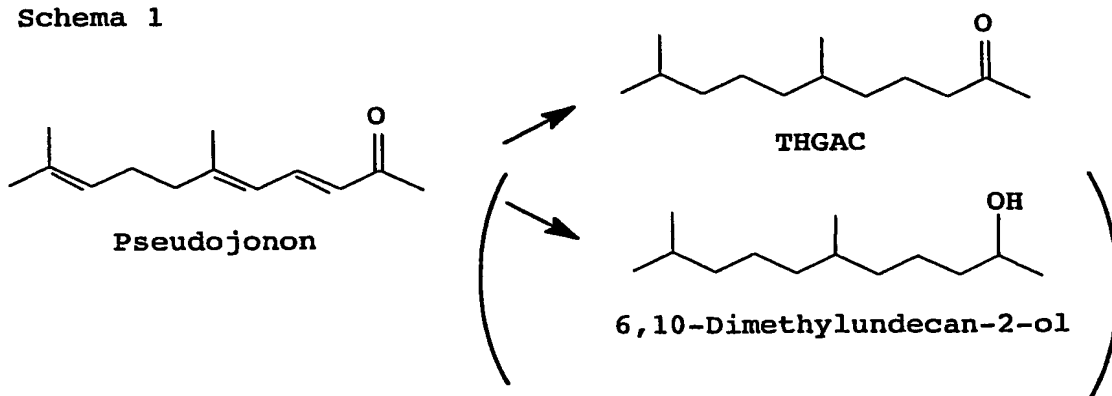
- 5 Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Tetrahydrogeranylacetone durch selektive Hydrierung von Pseudojonon, Geranylacetone und/oder Dihydrogeranylacetone.
- 10 Tetrahydrogeranylacetone (THGAC, Hexahydropseudojonon) wird als Ausgangsstoff für die Herstellung von Isophytol verwendet, welches seinerseits als Edukt für die Herstellung von Vitamin E und Vitamin K eingesetzt wird (s. z.B. Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5th ed. on CD-Rom, "Vitamins", chapter 4.11).
- 15 Die GB 788,301 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von THGAC bei dem im letzten Schritt Geranylacetone oder Dihydrogeranylacetone (Tetrahydropseudojonon) zu THGAC hydriert wird.
- 20 Prinzipiell sollte THGAC auch durch Hydrierung von Pseudojonon zugänglich sein, das durch Umsetzung von Citral mit Aceton oder durch Umsetzung von Dihydrolinalool mit Diketen oder mit Isopropenylmethylether hergestellt werden kann (s. Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, loc. cit.). Bei der Herstellung von
- 25 THGAC aus Pseudojonon stellt sich jedoch das Problem, dass drei olefinische Doppelbindungen in Gegenwart einer Ketocarbonylgruppe selektiv hydriert werden müssen (siehe Schema 1).

Schema 1

30

35

40



2

- Katalytische Hydrierungen an heterogenen Katalysatoren werden vielfach unter Einsatz von Festbettreaktoren durchgeführt, um die Vorzüge einer kontinuierlichen Verfahrensführung zu erhalten. Allerdings müssen dafür speziell präparierte Katalysatoren hergestellt und eingesetzt werden, die bei Verlust der Aktivität - oft bereits nach kürzeren Standzeiten - in aufwändiger Weise ausgetauscht oder regeneriert werden müssen, was in der Regel nicht nur mit der Abstimmung der Hydrieranlage, sondern auch der nachfolgenden Aufarbeitungsstufen verbunden ist.
- 10 Alternativ kann eine heterogen katalysierte Hydrierung in Form einer Suspensionsreaktion durchgeführt werden, wobei der Hydrierkatalysator durch Zufuhr mechanischer Energie z.B. in einem Rührkessel in einer Flüssigphase suspendiert wird, vgl. z.B. Ullmanns
- 15 Encyklopädie der technischen Chemie, 4. Aufl. Band 13, 1997, S. 138, Verlag Chemie Weinheim. Eine Erhöhung der Energiezufuhr über den zur Suspendierung erforderlichen Betrag führt zu keiner nennenswerten Verbesserung des Stofftransports der zu hydrierenden Moleküle an die Oberfläche der Katalysatorteilchen, da die er-
- 20 zielbare Relativgeschwindigkeit zwischen Katalysatorteilchen und Flüssigphase die Sedimentationsgeschwindigkeit nur unwesentlich übersteigt. Fließ- oder Wirbelbettreaktoren gestatten zwar höhere Relativgeschwindigkeiten, erfordern aber die Verwendung deutlich größerer Katalysatorteilchen, damit im Betrieb ein mehr oder we-
- 25 niger stark expandiertes Katalysatorbett vorliegt. Die geringere volumenbezogene Oberfläche größerer Katalysatorteilchen limitiert aber den Stoffumsatz und kompensiert so den Effekt der höheren Relativgeschwindigkeit.
- 30 Die US 5,939,589 beschreibt ein Verfahren zur Durchführung von katalytischen Reaktionen, bei dem eine flüssige Phase, in der ein Katalysator suspendiert vorliegt, und eine Gasphase im Reaktor durch eine Vorrichtung geführt werden, die Öffnungen oder Kanäle mit einem hydraulischen Durchmesser von 0,5 bis 20 mm aufweist.
- 35 Beschrieben wird die Hydrierung von Hydrodehydrolyalool zu Hydrolyalool und weiter zu Tetrahydrolyalool. Hydrodehydrolyalool enthält lediglich eine Dreifachbindung als zu hydrierende funktionelle Gruppe, so dass der Fachmann dieser Schrift keine Anregung bezüglich einer selektiven Hydrierung entnommen hätte.
- 40 Der vorliegenden Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde ein Verfahren zur Herstellung von THGAC aus Pseudojonon, Geranylaceton und/oder Dihydrogeranylaceton bereitzustellen, das eine hohe Selektivität bezüglich der Hydrierung der C-C-Doppelbindungen aufweist,
- 45 d.h. bei dem die Bildung des 6,10-Dimethylundecanols unter Reduktion der Carbonylgruppe möglichst unterdrückt ist, und das die

3

Vorteile einer hohen Raum-Zeit-Ausbeute und eines einfachen Katalysator austausches vereint.

Die Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst durch ein Verfahren, bei dem man Pseudojonon, Geranylaceton und/oder Dihydrogeranylaceton, vorzugsweise Pseudojonon, in flüssiger Phase, in der Teilchen eines Katalysators suspendiert sind, der zur präferentiellen Hydrierung von Kohlenstoff-Kohlenstoff-Doppelbindungen vor Kohlenstoff-Sauerstoff-Doppelbindungen fähig ist, in Gegenwart eines wasserstoffhaltigen Gases durch eine Vorrichtung führt, welche den Transport der Katalysatorteilchen hemmt.

Beim erfindungsgemäßen Verfahren wird eine höhere Relativgeschwindigkeit der Flüssigphase gegenüber den Katalysatorteilchen erzeugt, weil der Transport der Katalysatorteilchen durch geeignete Mittel, wie Einbauten in einem Reaktor, gehemmt wird, d.h. die Partikel werden gegenüber der umgebenden Flüssigkeit stärker zurückgehalten. In Verbindung mit der hohen volumenbezogenen Oberfläche der suspendierten Partikel werden im Ergebnis hohe Raum-Zeit-Ausbeuten erzielt.

Eine geeignete Vorrichtung zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens ist in der EP-A 798 039 beschrieben.

Die den Transport der Katalysatorteilchen hemmende Vorrichtung weist vorzugsweise Öffnungen oder Kanälen auf, deren hydraulischer Durchmesser das 2- bis 2000-fache, insbesondere das 5- bis 500-fache, besonders bevorzugt das 5- bis 100-fache des mittleren Durchmessers der Katalysatorteilchen beträgt.

Der hydraulische Durchmesser ist eine dem Fachmann geläufige Kenngröße zur Beschreibung des Äquivalentdurchmessers nicht-kreisrunder Kanalstrukturen. Der hydraulische Durchmesser einer Öffnung ist als Quotient des 4-fachen Querschnitts der Öffnung und deren Umfang definiert. Bei Kanälen mit einem Querschnitt in Gestalt eines gleichschenkeligen Dreiecks lässt sich der hydraulische Durchmesser als

$$\frac{2bh}{b + 2s}$$

beschreiben, worin b für die Basis, h für die Höhe und s für die Schenkellänge des Dreiecks steht.

Die Öffnungen oder Kanäle geeigneter Vorrichtungen weisen im Allgemeinen einen hydraulischen Durchmesser von 0,5 bis 20 mm, vorzugsweise 1 bis 10 mm, besonders bevorzugt 1 bis 3 mm, auf.

- 5 Üblicherweise verwendet man Katalysatorteilchen eines mittleren Durchmessers von 0,0001 bis 2 mm, bevorzugt von 0,001 bis 1 mm, besonders bevorzugt von 0,005 bis 0,1 mm.

- Die den Transport der Katalysatorteilchen hemmende Vorrichtung
10 kann aus einer Schüttung, einem Gestrick, einer offenzelligen Schaumstruktur, vorzugsweise aus Kunststoff z.B. Polyurethan oder Melaminharz, oder Keramik, oder einem Packungselement, wie es grundsätzlich, d.h. seiner geometrischen Form nach, bereits aus der Destillations- und Extraktionstechnik bekannt ist, bestehen.
15 Für Zwecke der vorliegenden Erfindung haben die Packungen jedoch grundsätzlich einen wesentlich, regelmäßig um den Faktor 2 bis 10 kleineren hydraulischen Durchmesser als vergleichbare Einbauten im Bereich der Destillations- und Extraktionstechnik.

- 20 Als Packungselemente eignen sich insbesondere Metallgewebepackungen bzw. Drahtgewebepackungen, z.B. der Bauart Montz A3, Sulzer BX, DX und EX. Anstelle von Metallgewebepackungen können auch Packungen aus anderen gewebten, gewirkten oder gefilzten Materialien verwendet werden. Weiterhin eignen sich Packungen ebener
25 oder gewellter Bleche, bevorzugt ohne Perforation oder andere größere Öffnungen, beispielsweise entsprechend den Bauarten Montz B1 oder Sulzer Mellapak. Vorteilhaft sind auch Packungen aus Streckmetall, wie z.B. Packungen des Typs Montz BSH. Entscheidend für die Eignung einer Packung im Rahmen der vorliegenden Erfindung ist nicht deren Geometrie, sondern die für die Stromführung entstehenden Öffnungsgrößen bzw. Kanalbreiten in der Packung.
30

- In einer bevorzugten Ausführungsform weisen die der Flüssigphase zugewandten Oberflächen der Vorrichtung eine Rauigkeit im Bereich
35 des 0,1 bis 10-fachen, vorzugsweise des 0,5- bis 5-fachen, des mittleren Durchmessers der Katalysatorteilchen auf. Bevorzugt sind Materialien, deren Oberflächen einen Mittelrauwert R_a (bestimmt nach DIN 4768/1) von 0,001 bis 0,01 mm aufweisen. Eine entsprechende Oberflächenrauigkeit kann bei Verwendung von
40 Drahtgewebepackungen aus Edelstahl durch thermische Behandlung in Gegenwart von Sauerstoff erreicht werden, z.B. indem man das Gewebe an der Luft bei einer Temperatur von etwa 800 °C tempert.

- Die Flüssigphase enthält vorzugsweise wenigstens 80 Gew.-%, insbesondere
45 besondere wenigstens 90 Gew.-% Pseudojonon, d.h. sie enthält vorzugsweise keine größeren Mengen Verdünnungsmittel. Obgleich nicht

5

bevorzugt, kann die Flüssigphase aber Verdünnungsmittel, wie z.B. C₁-C₄-Alkanole, z.B. Methanol enthalten.

Als wasserstoffhaltiges Gas verwendet man in der Regel Wasserstoffgas mit einer Reinheit von wenigstens 99,5 Vol.-%. Es wird in wenigstens stöchiometrischer Menge, bezogen auf die in der Flüssigphase enthaltene Carbonylverbindung eingesetzt, meist in einem Überschuß von 1 bis 20 %.

- 10 Als Katalysator kann ein handelsüblicher Suspensionskatalysator verwendet werden, der zur präferentiellen Hydrierung von Kohlenstoff-Kohlenstoff-Doppelbindungen vor Kohlenstoff-Sauerstoff-Doppelbindungen fähig ist. Es eignen sich besonders solche Katalysatoren, die als Aktivkomponente mindestens Palladium enthalten.
- 15 Neben Palladium kann der Katalysator auch weitere Aktivkomponenten, wie beispielsweise Zink, Cadmium, Platin, Silber oder ein Seltenerdmetall wie Cer, enthalten. Der Katalysator kann in metallischer und/oder oxidischer Form eingesetzt werden. Vorzugsweise sind die Aktivkomponenten auf einem Trägermaterial aufgebracht.
- 20 Als Trägermaterialien eignen sich beispielsweise SiO₂, TiO₂, ZrO₂, Al₂O₃ oder Kohlenstoff wie Graphite, Ruße oder Aktivkohle. Aktivkohle ist aufgrund ihrer leichten Suspendierbarkeit bevorzugt. Der Gehalt an Palladium beträgt vorzugsweise 0,1 bis 10 Gew.-%, insbesondere 0,5 bis 7 Gew.-% und besonders bevorzugt
- 25 2 bis 6 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des Katalysators.

Das suspendierte Katalysatormaterial kann mit Hilfe gebräuchlicher Techniken in die Flüssigphase eingebracht und darin verteilt werden.

30

- Bei der den Transport der Katalysatorteilchen hemmenden Vorrichtung handelt es sich üblicherweise um Einbauten in einem Reaktor, die so angeordnet sind, dass das Reaktionsgemisch beim Passieren des Reaktors durch die Vorrichtung gezwängt wird, d.h. die Einbauten füllen in der Regel den gesamten freien Querschnitt des
- 35 Reaktors. Die Einbauten erstrecken sich vorzugsweise, aber nicht notwendigerweise über die gesamte Ausdehnung des Reaktors in Strömungsrichtung der Flüssigphase.

- 40 Es eignen sich verschiedene Reaktorformen, wie Strahldüsenreaktoren, Blasensäulen oder Rohrbündelreaktoren. Davon sind eine vertikal angeordnete Blasensäule oder ein Rohrbündelreaktor, bei dem die Einbauten in den einzelnen Rohren untergebracht sind, besonders geeignet.

45

6

Das wasserstoffhaltige Gas und die Flüssigphase werden bevorzugt im Gleichstrom, vorzugsweise entgegen der Richtung der Schwerkraft, durch den Reaktor geführt. Die Gasphase wird beispielsweise mittels einer Injektordüse innig mit der Flüssigphase
5 durchmischt. Die Leerrohrgeschwindigkeit der Flüssigphase beträgt vorzugsweise mehr als $100 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$, insbesondere 100 bis $250 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$, die der Gasphase mehr als $100 \text{ Nm}^3/\text{m}^2\text{h}$, insbesondere 100 bis $250 \text{ Nm}^3/\text{m}^2\text{h}$. Um ausreichend hohe Leerrohrgeschwindigkeiten zu erzielen, ist es bevorzugt, Teilströme der Gas- und Flüssigphase, die
10 den Reaktor verlassen, zurückzuführen.

Die im Hydrier austrag suspendierten Katalysatorteilchen werden durch übliche Verfahren abgetrennt, z.B. durch Sedimentation, Zentrifugation, Kuchenfiltration oder Querstromfiltration.

15

Das Verfahren wird vorzugsweise bei einem Druck von 1 bis 100 bar, besonders bevorzugt von 1 bis 50 bar und insbesondere von 1 bis 20 bar durchgeführt. Die Reaktionstemperatur beträgt vorzugsweise 20 bis 150°C , besonders bevorzugt 20 bis 120°C und insbesondere
20 dere 40 bis 80°C .

Das erfindungsgemäße Verfahren wird durch die beigefügte Figuren und das nachstehende Beispiel näher veranschaulicht.

25 Figur 1 zeigt schematisch eine zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens geeignete Anlage mit einem Reaktor (Blasensäule) 1 mit einer Packung 2, die den Transport der Katalysatorteilchen hemmte. In den Reaktor werden über die Leitungen 3 Flüssigkeit und über die Leitung 4 Wasserstoffgas eingeführt. Das Kreisgas
30 wird mittels der Mischdüse 6 mit Frischgas und der durch die Pumpe 14 im Kreis geführten Suspension 11 eingemischt. Der Reaktorausstrag wird über die Leitung 7 in das Abscheidegefäß 8 gefahren, in dem die Gasphase abgeschieden und über Leitung 9 abgeführt wird. Von dieser Gasmenge wird zur Begrenzung der Auf-
35 pegelung von gasförmigen Verunreinigungen ein Teilstrom über die Leitung 10 entnommen und die verbleibende Restmenge über die Leitung 5 in den Reaktor geführt. Der suspendierte Katalysator verbleibt im Reaktorsystem, indem er über einen Querstromfilter 12 zurückgehalten und nur katalysatorfreie Flüssigphase über die
40 Leitung 13 austritt und entnommen wird. Über den Wärmetauscher 15 kann die Temperatur im Reaktorsystem gezielt eingestellt werden.

Figur 2 zeigt schematisch eine Lage eines gefalteten Gewebes. Erfindungsgemäß verwendbare Packungen werden erhalten, wenn mehrere
45 dieser Lagen übereinander angeordnet werden. Jede Lage umfasst

7

Kanäle mit einem Querschnitt in Gestalt eines gleichschenkeligen Dreiecks mit der Schenkellänge s , der Basis b und der Höhe h .

Beispiele

5

Man verwendete eine Anlage wie in Fig. 1 dargestellt, die eine mit einer Gewebepackung vom Typ Montz A3 1200 bestückte Blasen-

- 10 säule (1000 mm Länge, 27,3 mm Durchmesser) umfasste. Die Packung bestand aus übereinander angeordneten Lagen eines Gewebe von Edelstahlstrahlen, das so gefalzt war, dass Kanäle mit einem Querschnitt in Gestalt eines gleichschenkeligen Dreiecks gebildet werden, wobei die Schenkellänge 3,1 mm, die Basis 5,1 mm und die Höhe 1,8 mm betrug, entsprechend einem hydraulischen Durchmesser von 1,62 mm.

15

Pseudojonon (97 gew.-%ig) mit dem darin suspendierten Katalysator und Wasserstoffgas wurden im Gleichstrom mit einer Leerrohrgeschwindigkeit von $200 \text{ m}^3/\text{m}^2\cdot\text{h}$ von unten in den gepackten Reaktor eingebracht. Als Katalysator wurde ein handelsüblicher Pd-Kohle-

- 20 Suspensionskatalysator mit einem Gehalt von 5 % Palladium auf Aktivkohle und einer mittleren Korngröße von $50 \mu\text{m}$ verwendet.

Beispiel 1

- 25 Die Reaktion erfolgte kontinuierlich unter einem Wasserstoffdruck von 10 bar und bei einer Temperatur von 100°C . Man erhielt einen Umsatz von mehr als 99,9 %, wobei Tetrahydrogeranylaceton mit einer Selektivität von mehr als 96 %, bezogen auf die Gesamtproduktmenge, gebildet wurde. Die Selektivität zu 6,10-Dimethylundecan-2-ol betrug 3 %. Die Katalysatorbelastung betrug $2,5 \text{ kg}_{\text{Pseudojonon}}/(\text{kg}_{\text{Katalysator}}\cdot\text{h})$; die Raum-Zeit-Ausbeute betrug $500 \text{ kg}_{\text{Pseudojonon}}/(\text{m}^3\cdot\text{h})$.

Beispiel 2

35

Die Reaktion erfolgte kontinuierlich unter einem Wasserstoffdruck von 10 bar und bei einer Temperatur von 60°C . Man erhielt einen Umsatz von mehr als 99,9 %, wobei Tetrahydrogeranylaceton mit einer Selektivität von mehr als 96 %, bezogen auf die Gesamtproduktmenge, gebildet wurde. Die Selektivität zu 6,10-Dimethylundecan-2-ol betrug 0,3 %. Die Katalysatorbelastung betrug $2,5 \text{ kg}_{\text{Pseudojonon}}/(\text{kg}_{\text{Katalysator}}\cdot\text{h})$; die Raum-Zeit-Ausbeute betrug $500 \text{ kg}_{\text{Pseudojonon}}/(\text{m}^3\cdot\text{h})$.

45 712/ew

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Tetrahydrogeranylaceton, bei dem man Pseudojonon, Geranylaceton und/oder Dihydrogeranylaceton in flüssiger Phase, in der Teilchen eines Katalysators suspendiert sind, der zur präferentiellen Hydrierung von Kohlenstoff-Kohlenstoff-Doppelbindungen vor Kohlenstoff-Sauerstoff-Doppelbindungen fähig ist, in Gegenwart eines wasserstoffhaltigen Gases durch eine Vorrichtung führt, welche den Transport der Katalysatorteilchen hemmt.
2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei die Aktivkomponente des Katalysators Palladium enthält.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, wobei die den Transport der Katalysatorteilchen hemmende Vorrichtung Öffnungen oder Kanälen aufweist, deren hydraulischer Durchmesser das 2- bis 2000-fache des mittleren Durchmessers der Katalysatorteilchen beträgt.
4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei man Katalysatorteilchen eines mittleren Durchmessers von 0,0001 bis 2 mm verwendet.
5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei man als die den Transport der Katalysatorteilchen hemmende Vorrichtung eine Schüttung, ein Gestrick, eine offenzellige Schaumstruktur oder ein Packungselement verwendet.
6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei man die Flüssigphase und das wasserstoffhaltige Gas mit einer Leerrohrgeschwindigkeit von mehr als 100 m³/m²h durch die den Transport der Katalysatorteilchen hemmende Vorrichtung führt.
7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die der Flüssigphase zugewandten Oberflächen der Vorrichtung eine Rauigkeit im Bereich des 0,1 bis 10-fachen des mittleren Durchmessers der Katalysatorteilchen aufweisen.
8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Flüssigphase wenigstens 80 Gew.-% Pseudojonon umfasst.

2

9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Reaktionsdruck 1 bis 100 bar beträgt.
- 5 10. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Reaktionstemperatur 20 bis 120°C beträgt.

10

712/ew

15

20

25

30

35

40

45

Zusammenfassung

5 Beschrieben wird ein Verfahren zur Herstellung von Tetrahydrogeranylaceton, bei dem man Pseudojonon, Geranylaceton und/oder Dihydrogeranylaceton in flüssiger Phase, in der Teilchen eines Katalysators suspendiert sind, der zur präferentiellen Hydrierung von Kohlenstoff-Kohlenstoff-Doppelbindungen vor Kohlenstoff-Sauerstoff-Doppelbindungen fähig ist, in Gegenwart eines wasserstoffhaltigen Gases durch eine Vorrichtung führt, welche den
10 Transport der Katalysatorteilchen hemmt.

15

20

25

30

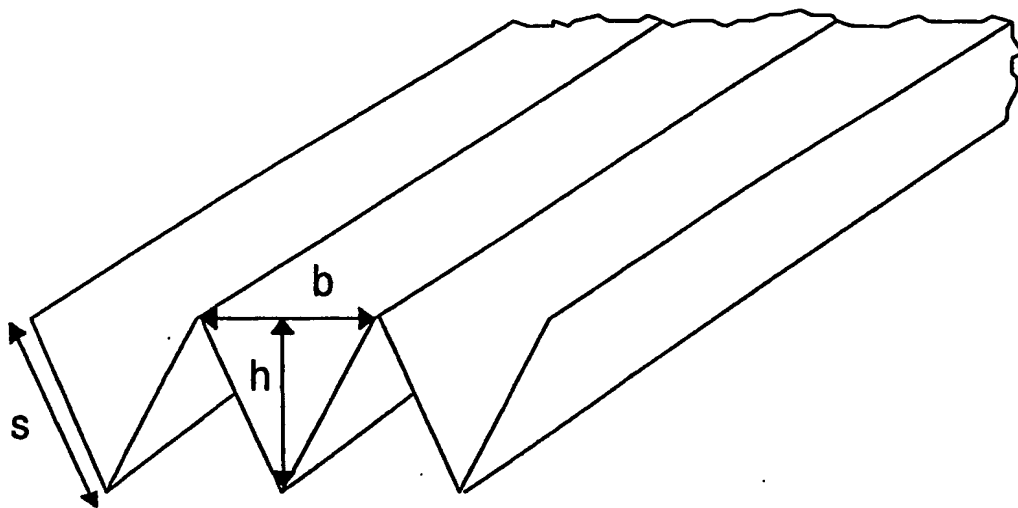
35

40

45

2/2

Fig. 2



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.